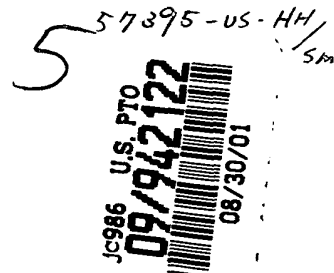


日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application: 2000年 8月30日

出 願 番 号

Application Number: 特願2000-261092

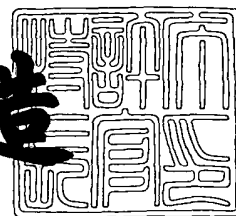
出 願 人

Applicant(s): 株式会社デンソー

2001年 5月31日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3049381

【書類名】 特許願

【整理番号】 IP5036

【提出日】 平成12年 8月30日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C01B 3/38

H01M 8/06

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内

【氏名】 近藤 靖男

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内

【氏名】 寺尾 公良

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内

【氏名】 川口 清司

【特許出願人】

【識別番号】 000004260

【氏名又は名称】 株式会社デンソー

【代理人】

【識別番号】 100100022

【弁理士】

【氏名又は名称】 伊藤 洋二

【電話番号】 052-565-9911

【選任した代理人】

【識別番号】 100108198

【弁理士】

【氏名又は名称】 三浦 高広

【電話番号】 052-565-9911

【選任した代理人】

【識別番号】 100111578

【弁理士】

【氏名又は名称】 水野 史博

【電話番号】 052-565-9911

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 038287

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 水素生成装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 水素消費装置に供給する水素を生成する水素生成装置であって、

水素化合物を含む改質原料を供給する改質原料供給部（10）と、

前記改質原料供給部（10）の下流側に配置され、前記改質原料が通過する改質原料通路（B）および前記水素消費装置にて消費されなかったオフガスが通過するオフガス通路（C）とが形成され、前記オフガス通路（C）にて前記オフガスを燃焼させる熱交換部（20、70、81）と、

前記熱交換部（20、70、81）の下流側に配置され、触媒反応により前記改質原料を水素に改質する改質部（41）と、

前記改質部（41）の上流側に配置され、燃焼用炭化水素化合物を燃焼させる燃焼部（14、15）と、

前記燃焼部（14、15）における燃焼用炭化水素化合物の燃焼により生じた燃焼ガスを、前記改質部（41）を通過させた後に前記熱交換部（20、70、81）のオフガス通路（C）に導く燃焼ガス導入経路（61）とを備え、

前記熱交換部（20、70、81）は、前記改質原料通路（B）と前記オフガス通路（C）とが熱的に接触するように構成されており、前記オフガスの燃焼により発生した熱あるいは前記燃焼ガスの熱を、前記改質原料に伝えるように構成されていることを特徴とする水素生成装置。

【請求項 2】 前記熱交換部（20、70、81）における前記オフガス通路（C）には、酸化触媒が担持されていることを特徴とする請求項 1 に記載の水素生成装置。

【請求項 3】 前記改質原料は炭化水素化合物であり、該炭化水素化合物と前記燃焼用炭化水素化合物は、同一の炭化水素化合物を用いることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の水素生成装置。

【請求項 4】 前記熱交換部（20、70、81）における前記改質原料通路（B）には、酸化触媒が担持されていることを特徴とする請求項 1 ないし 3 の

いずれか 1 つに記載の水素生成装置。

【請求項 5】 前記燃焼部（14）は、前記改質原料供給部（10）と前記熱交換部（20、70、81）との間に配置されていることを特徴とする請求項 1 ないし 4 のいずれか 1 つに記載の水素生成装置。

【請求項 6】 前記燃焼部（14）は、前記熱交換部（20、70、81）と前記改質部（41）との間に配置されていることを特徴とする請求項 1 ないし 4 のいずれか 1 つに記載の水素生成装置。

【請求項 7】 前記燃焼部（14）における前記燃焼用炭化水素化合物の燃焼は、前記改質部（41）が触媒反応を開始可能な所定温度に到達するまで行われることを特徴とする請求項 1 ないし 6 のいずれ 1 つに記載の水素生成装置。

【請求項 8】 前記熱交換部（20、70）は、前記改質原料通路（B）と前記オフガス通路（C）とが互いに直交するように形成された直交流型、前記改質原料通路（B）と前記オフガス通路（C）とが互いに対向するように形成された対向流型、あるいは前記直交流型と前記対向流型の併用型であることを特徴とする請求項 1 ないし 7 のいずれか 1 つの記載の水素生成装置。

【請求項 9】 前記熱交換部（81）は、回転軸（81b）を中心に回転駆動されるとともに、回転軸方向において、内面に酸化触媒が担持された多数の貫通流路（81a）を有する回転蓄熱体であり、

前記回転蓄熱体は前記回転軸（81b）を境にして、一方の領域は前記改質原料通路（B）を形成し、他方の領域は前記オフガス通路（C）を形成しており、

前記回転蓄熱体の回転によって、前記貫通流路（81a）は前記改質原料通路（B）と前記オフガス通路（C）との間を移動することを特徴とする請求項 1 ないし 7 のいずれか 1 つに記載の水素生成装置。

【請求項 10】 前記改質原料は空気を含んでおり、前記空気の一部は前記熱交換部（20、70、81）と前記改質部（41）との間に供給されることを特徴とする請求項 1 ないし 9 のいずれか 1 つに記載の水素生成装置。

【請求項 11】 前記水素消費装置にて消費されなかったオフガスを、前記熱交換部（20）のオフガス通路（C）に導入するオフガス導入経路（61）を備え、

前記燃焼ガス導入経路と、前記オフガス導入経路は同一経路にて構成されていることを特徴とする請求項 1 ないし 1 0 のいずれか 1 つの記載の水素生成装置。

【請求項 1 2】 前記水素消費装置は燃料電池であることを特徴とする請求項 1 ないし 1 1 のいずれか 1 つに記載の水素生成装置。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、炭化水素系原料を改質して改質ガスを生成する燃料電池用の改質原料供給システムに関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

従来より、燃料電池に水素を供給する装置として、炭化水素化合物を改質して水素リッチガスを生成する改質器が知られている。改質器では、高温での触媒反応（水蒸気改質反応）により炭化水素化合物を含む改質原料を改質して水素を発生させる。この水蒸気改質反応のためには、改質器を高温に維持する必要がある。

【0 0 0 3】

改質器を高温に維持する方法として、燃料電池から排出される電気化学反応に供されなかった未反応の燃料ガス（水素を含有するオフガス）を燃焼させて、この燃焼熱を利用して改質器を加熱する方法が提案されている。

【0 0 0 4】

このような改質器として、例えば特開平 1 1 - 3 4 3 1 0 1 号公報に記載の改質器（水素生成装置）がある。この改質器は、隔壁で分離された燃焼室と改質室とからなり、隔壁を介して燃焼室と改質室との間で熱交換が行われるように構成されている。そして、燃料（オフガス）を燃焼室で燃焼させて燃焼ガスとし、その燃焼熱で改質室を加熱し、その内部に充填された改質触媒により改質室を流れる改質原料（炭化水素化合物と水の混合気）が水素を含むガス（改質ガス）に改質される。

【0 0 0 5】

【発明が解決しようとする課題】

ところが、上記公報記載の改質器では、改質室に充填された改質触媒は、燃焼室における燃焼熱によって熱交換器の隔壁を介して間接的に加熱されるために熱抵抗が大きくなり、昇温が遅れて改質反応の始動が遅れる。また、燃焼室での燃焼を開始するにあたって、燃料および熱容量の大きな触媒体や熱交換器を加熱する必要があるために始動時昇温に要する時間が長く不十分なものとなり、これによっても、改質反応の始動が遅れる。

【0006】

また、燃焼室では、始動時において燃料が燃焼開始（着火）するまで、あるいは始動後燃焼が安定するまでの間、燃焼ガス中の未燃焼成分や一酸化炭素といった有害成分が大気中に排出されるという問題がある。さらに、蒸発器、予熱器等の主要構成である熱交換器のスペースが大きいため、改質システム全体の体格が大きなものとなっている。

【0007】

本発明は、上記問題点に鑑み、改質反応により水素を生成して水素消費装置に水素を供給する水素生成装置において、改質反応の始動性を向上させることを目的とし、さらに、燃焼ガス中の有害成分削減および装置の小型化を図ることを他の目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するため、請求項1に記載の発明では、水素消費装置に供給する水素を生成する水素生成装置であって、水素化合物を含む改質原料を供給する改質原料供給部（10）と、改質原料供給部（10）の下流側に配置され、改質原料が通過する改質原料通路（B）および水素消費装置にて消費されなかったオフガスが通過するオフガス通路（C）とが形成され、オフガス通路（C）にてオフガスを燃焼させる熱交換部（20、70、81）と、熱交換部（20、70、81）の下流側に配置され、触媒反応により改質原料を水素に改質する改質部（41）と、改質部（41）の上流側に配置され、燃焼用炭化水素化合物を燃焼させる燃焼部（14、15）と、燃焼部（14、15）における燃焼用炭化水素化

合物の燃焼により生じた燃焼ガスを、改質部（４１）を通過させた後に熱交換部（２０、７０、８１）のオフガス通路（Ｃ）に導く燃焼ガス導入経路（６１）とを備え、

熱交換部（２０、７０、８１）は、改質原料通路（Ｂ）とオフガス通路（Ｃ）とが熱的に接触するように構成されており、オフガスの燃焼により発生した熱あるいは燃焼ガスの熱を、改質原料に伝えるように構成されていることを特徴としている。

【０００９】

このように、燃焼用炭化水素化合物を火炎燃焼させて燃焼ガスを生成することで、燃焼ガスの燃焼熱により直接的に改質システムの各構成要素を加熱し、速やかに改質反応開始温度まで昇温させることができる。これにより、改質反応開始までの始動時間を短縮することが可能となる。さらに、オフガスの燃焼熱にて改質原料を加熱して気化させることができる。

【００１０】

また、請求項２に記載の発明では、熱交換部（２０、７０、８１）におけるオフガス通路（Ｃ）には、酸化触媒が担持されていることを特徴としている。これにより、オフガスを熱交換器（２０）にて触媒燃焼させることができる。この触媒燃焼に伴う発熱量により、改質原料通路（Ｂ）を通過する改質原料を加熱・蒸発（気化）させ、さらに、改質原料を介して改質部（４１）を加熱することができる。なお、酸化触媒としては、Pt、Pd、Rh等の貴金属系触媒を用いることができる。

【００１１】

また、請求項３に記載の発明では、改質原料は炭化水素化合物であって、この炭化水素化合物と燃焼用炭化水素化合物は、同一の炭化水素化合物を用いることを特徴としている。

【００１２】

また、請求項４に記載の発明では、熱交換部（２０、７０、８１）における改質原料通路（Ｂ）には、酸化触媒が担持されていることを特徴としている。これにより、燃焼ガスを触媒燃焼させて完全燃焼させることができ、燃焼ガス中の有

害ガスの排出を低減できる。

【 0 0 1 3 】

また、燃焼部（14）は、請求項5に記載の発明のように、改質原料供給部（10）と熱交換部（20、70、81）との間に配置することができ、請求項6に記載の発明のように、熱交換部（20、70、81）と改質部（41）との間に配置することもできる。

【 0 0 1 4 】

また、請求項7に記載の発明では、燃焼部（14）における燃焼用炭化水素化合物の燃焼は、改質部（41）が触媒反応を開始可能な所定温度に到達するまで行われることを特徴としている。これにより、熱交換器（20）での加熱が火炎燃焼からオフガス燃焼によるものに切り替えられ、水素生成装置が自立運転を開始する。

【 0 0 1 5 】

また、請求項8に記載の発明では、熱交換部（20、70）は、改質原料通路（B）とオフガス通路（C）とが互いに直交するように形成された直交流型、改質原料通路（B）とオフガス通路（C）とが互いに対向するように形成された対向流型、あるいは直交流型と対向流型の併用型であることを特徴としている。

【 0 0 1 6 】

また、請求項9に記載の発明では、熱交換部（81）は、回転軸を中心に回転駆動されるとともに、回転軸方向において、内面に触媒が担持された多数の貫通流路（81a）を有する回転蓄熱体であり、回転蓄熱体は回転軸を境にして、一方の領域は改質原料通路（B）を形成し、他方の領域はオフガス通路（C）を形成しており、回転蓄熱体の回転によって、貫通流路（81a）は改質原料通路（B）とオフガス通路（C）との間を移動することを特徴としている。

【 0 0 1 7 】

このような回転蓄熱式熱交換器を用いることで、位面積当たりの伝熱量を大きくすることができ、熱交換効率をより高めることができる。また、回転蓄熱体はセラミック化を容易に行うことができるため、低コストであるとともに触媒の担持を容易に行うことができる。

【0018】

また、請求項10に記載の発明では、改質原料は空気を含んでおり、空気の一部は熱交換部（20、70、81）と改質部（41）との間に供給されることを特徴としている。このような構成によれば、改質部（41）に供給される酸素量が増加するので、発熱反応である酸化触媒反応により、改質部（41）の加熱を促進することができる。

【0019】

また、請求項11に記載の発明では、水素消費装置にて消費されなかったオフガスを、熱交換部（20）のオフガス通路（C）に導入するオフガス導入経路（61）を備え、燃焼ガス導入経路と、オフガス導入経路は同一経路にて構成されていることを特徴としている。

【0020】

また、請求項12に記載の発明では、水素消費装置は燃料電池であることを特徴としている。

【0021】

なお、上記各手段の括弧内の符号は、後述する実施形態に記載の具体的手段との対応関係を示すものである。

【0022】

【発明の実施の形態】

（第1実施形態）

以下、本発明を適用した第1実施形態を図1～図4に基づいて説明する。図1は本第1実施形態の水素生成装置の概略構成を示すブロック図であり、図2は水素生成装置の各構成要素の配置関係を示す概念図である。

【0023】

図1、図2に示すように、本第1実施形態の水素生成装置は、改質原料供給部10、熱交換器（蒸発部）20、オフガス供給部30、改質部41、CO除去部44等を備えている。改質原料供給部10にて生成された改質原料（改質用燃料である炭化水素化合物と水と空気との混合気）は、熱交換器20で加熱・気化（蒸発）され、改質部41にて H_2 およびCOを含む改質ガスに改質され、CO除

去部 4 4 にて C O が除去された後、水素リッチガスとして燃料電池（水素消費装置） 6 0 に供給される。

【 0 0 2 4 】

燃料電池 6 0 には、水素とともに図示しない空気供給部より空気（酸素）が供給されるように構成されており、水素と酸素との化学反応により発電する。燃料電池 6 0 では、供給された水素のうち発電に用いられなかった未反応水素を含んだオフガスが排出される。燃料電池 6 0 から排出されるオフガスは、オフガス導入経路 6 1 を介してオフガス供給部 3 0 より熱交換器 2 0 に供給され、大気中に放出される。なお、本実施形態では、改質用燃料としてガソリンや灯油といった液体石油系燃料を用いている。

【 0 0 2 5 】

改質原料供給部 1 0 は、外部から改質用空気を導入する空気通路 1 1、改質用燃料と水を噴霧する噴霧ノズル 1 3、改質原料混合部 1 2、始動用燃焼室 1 4 を備えている。空気通路 1 1 より導入された改質用空気は、混合部 1 2 にて噴霧ノズル 1 3 より噴霧された改質用燃料および水と混合され、気流干渉により微粒化と混合が促進される。混合部 1 2 にて生成された混合気（改質原料）は始動用燃焼室 1 4 に拡散され、下流側の熱交換器 2 0 に供給される。改質原料供給部 1 0 は、改質用燃料と改質用空気との混合割合を調整できるように構成されている。

【 0 0 2 6 】

改質用燃料は常温で供給され、水は常温から 1 0 0 ℃程度の温度で供給される。改質用空気は、後述のように熱交換器 2 0 にて 4 0 0 ℃程度に加熱されて供給される。

【 0 0 2 7 】

始動用燃焼室 1 4 には、始動時（特に冷間時）に混合部 1 2 にて生成される改質用燃料と空気との混合気を火炎燃焼させるための点火プラグ（点火手段） 1 5 が設けられている。この点火プラグ 1 5 による燃焼火炎は始動用燃焼室 1 4 にて保持されるように構成されている。このように、炭化水素化合物は改質用燃料として用いられるとともに、始動時には燃焼用燃料として用いられる。燃焼室 1 4 にて生成された燃焼ガスは、改質部 4 1 を通過した後、オフガス導入経路 6 1 を

介して熱交換器 2 0 のオフガス通路 C に導入される。このように、オフガス導入経路 6 1 は、燃焼ガスを熱交換器 2 0 のオフガス導入経路に導入する燃焼ガス導入経路としても用いられる。

【 0 0 2 8 】

図 3 は熱交換器 2 0 の単体斜視図である。図 3 に示すように、熱交換器 2 0 は、チューブ 2 1 と伝熱フィン 2 2 とから構成される直交流型熱交換器からなる。熱交換器 2 0 には、上記改質原料供給部 1 0 の空気通路 1 1 を流れる改質用空気が通過する改質用空気通路 A と、改質原料供給部 1 0 から供給される改質原料が通過する改質原料通路 B と、燃料電池 6 0 から環流してくるオフガスが通過するオフガス通路 C とが形成されている。改質用空気通路 A と改質原料通路 B はフィン 2 2 間に形成され、オフガス通路 C はチューブ 2 1 内に形成されており、改質用空気通路 A および改質原料通路 B と、オフガス通路 C は互いに直交している。このような構成により、改質用空気通路 A およびオフガス通路 C と、改質原料通路 B およびオフガス通路 C との間で、それぞれ熱交換器 2 0 の隔壁を介して熱交換を行うことができる。

【 0 0 2 9 】

図 4 (a) は、熱交換器 2 0 のチューブ 2 1 とフィン 2 2 の接合部分の拡大断面図であり、図 4 (b) は図 4 (a) の A - A 断面図である。図 4 (a) に示すように、チューブ 2 1 とフィン 2 2 のそれぞれの表面には、P t、P d、R h 等の貴金属触媒からなる酸化触媒 2 3 が添着（担持）されている。また、図 4 (b) に示すようにチューブ 2 1 の内側には酸化触媒が添着されたインナーフィン 2 4 が設けられており、熱交換効率を高めている。

【 0 0 3 0 】

図 2 に示すように、熱交換器 2 0 におけるオフガス通路 C (チューブ 2 1) の入口側には、燃料電池 6 0 から環流したオフガスを、空気と混合した上でオフガス通路 C に供給するオフガス供給部 3 0 が設けられている。オフガス供給部 3 0 は、外部から空気を導入する空気導入管 3 1、オフガスと空気とを混合してオフガス混合気を生成するオフガス・空気混合室 3 2、燃料電池 6 0 から環流するオフガスを噴射するオフガス噴射弁 3 3、オフガス混合気を拡散する混合気拡散室

3 4 とから構成されている。

【 0 0 3 1 】

オフガス供給部 3 0 にて生成されたオフガス混合気は、熱交換器 2 0 のチューブ 2 1 を通過する際に、チューブ 2 1 内面およびインナーフィン 2 4 表面に添着された触媒 2 3 の表面上で触媒無炎燃焼する。この燃焼熱によりオフガス通路 C は 1 0 0 0 ℃程度まで昇温し、改質用空気通路 A を通過する改質用空気と改質原料通路 B を通過する改質原料に熱を伝える。

【 0 0 3 2 】

熱交換器 2 0 の下流側には、改質触媒を備える改質部 4 1 が設けられている。熱交換器 2 0 で気化した改質原料は、熱交換器下流側通路 4 0 を介して改質部 4 1 に供給される。改質部 4 1 は、熱交換器 2 0 で気化した改質原料を部分酸化（発熱反応）し、この発熱により水蒸気改質（吸熱反応）を行う部分酸化改質器である。改質部 4 1 では、改質反応の結果、 H_2 と CO を含んだ改質ガスを生成する。本第 1 実施形態のように改質用炭化水素化合物として液体石油系燃料を用いた場合、安定した改質反応を維持するためには改質部 4 1 は 7 0 0 ℃程度になっている必要がある。

【 0 0 3 3 】

改質部 4 1 の下流側には、改質部 4 1 から流出する改質ガスの温度を検出することで改質部 4 1 の温度を検出する温度センサ 4 2 が設けられている。温度センサ 4 2 の下流側には、改質ガスの温度を CO の除去に必要な温度に冷却するための冷却部 4 3 と、冷却部 4 3 にて冷却された改質ガスから CO を除去して水素リッチガスを生成する CO 除去部 4 4 が設けられている。

【 0 0 3 4 】

本第 1 実施形態の水素生成装置には各種制御を行う制御部 5 0 が設けられている。制御部 5 0 には、温度センサ 4 2 にて検出した温度信号が入力され、点火プラグ 2 5 の点火制御や噴霧ノズル 1 3 による改質用燃料の供給量制御等を行うように構成されている。

【 0 0 3 5 】

以下、上記構成の水素生成装置の作動について説明する。まず、水素生成装置

の始動時について説明する。改質部 4 1 において改質反応を開始するためには、改質部 4 1 に供給される改質原料が蒸発・気化しており、かつ改質部 4 1 の改質触媒が改質反応を開始可能な所定温度まで昇温している必要がある。

【 0 0 3 6 】

そこで、まず改質原料供給部 1 0 において、改質原料混合部 1 2 にて改質用燃料と空気との混合気を生成し、この混合気を始動用燃焼室 1 4 で点火プラグ 2 5 により火炎燃焼させる。この火炎燃焼により生成した燃焼ガスは、熱交換器 2 0 の改質燃料経路 B を通過して改質部 4 1、冷却部 4 3、CO 除去部 4 4、燃料電池 6 0 に至り、その後、オフガス導入経路 6 1 を介して熱交換器 2 0 のオフガス通路 C を通過し、水素生成装置の各構成要素を急速に暖気した後、大気中に放出される。

【 0 0 3 7 】

このとき、燃焼ガスには不完全燃焼等により有害ガスが含まれるが、燃焼ガスは熱交換器 2 0 を通過する際に、フィン 2 2 およびチューブ 2 1、インナーフィン 2 4 に添着された触媒 2 3 により触媒燃焼（触媒酸化反応）する。従って、改質用燃料と空気との混合割合を調整するとともに、熱交換器 2 0 における触媒酸化反応と連動して燃焼ガスを完全酸化反応（完全燃焼）させ、燃焼ガス中の有害ガスを十分に清浄化させることができる。

【 0 0 3 8 】

燃焼ガスの燃焼熱により、熱交換器 2 0、改質部 4 1 の改質触媒（改質部、シフト部、浄化部）といった改質システムの各構成要素が急速に暖気（予熱）される。そして、温度センサ 4 2 にて検出した改質ガス温度が所定温度に到達した場合に、改質システムの構成要素が触媒反応開始温度に到達したと判断して、燃料供給を一時中断して火炎燃焼を停止する。

【 0 0 3 9 】

各構成要素の暖気が完了すると、熱交換器 2 0 の改質用空気通路 A を通過して加熱された改質用空気は、混合部 1 2 で改質用燃料および水と混合されて混合気（改質原料）となる。このとき、改質用空気は、熱交換器 2 0 の改質用経路 A を通過して改質用燃料と混合される前に予め加熱されるため、改質原料の気化を促

進することができる。

【 0 0 4 0 】

改質原料供給部 1 0 にて生成された改質原料は、熱交換器 2 0 に供給され、改質原料通路 B を通過して加熱・気化される。熱交換器 2 0 で気化された改質原料は、改質部 4 1 にて H_2 と CO を含む改質ガスに改質され、冷却部 4 3 にて冷却された後、 CO 除去部 4 4 にて CO が除去され水素リッチガスとなり、燃料電池 6 0 に供給される。

【 0 0 4 1 】

燃料電池 6 0 では、水素と酸素との化学反応により発電するとともに、未反応水素を含むオフガスが排出される。オフガスはオフガス導入経路 6 1 を介してオフガス供給部 3 0 に導入され、所定量の空気と混合されてオフガス混合気となり、熱交換器 2 0 のオフガス通路 C に供給される。オフガス混合気は、オフガス通路 C を通過する際に触媒燃焼を開始する。このオフガスの触媒燃焼によって発生した熱は、熱交換器 2 0 の隔壁を介して改質原料通路 B を通過する改質原料および改質用空気通路 A を通過する改質用空気に伝えられる。従って、改質原料の加熱・気化が促進される。

【 0 0 4 2 】

このように、オフガスの触媒燃焼による熱により、改質原料を加熱して気化するとともに、改質原料を介して下流側の改質部 4 1 をも加熱することができる。これにより、熱交換器 2 0、改質器 4 1 の加熱は、改質原料の火炎燃焼による加熱からオフガス燃焼による加熱に切り替わり、水素生成装置は自立運転を開始することができる。

【 0 0 4 3 】

次に、燃料電池 6 0 における負荷が変動した場合には、燃料電池 6 0 での負荷変動に応じて改質用燃料の供給量を調整する。オフガス燃焼による燃焼熱の不足は、改質用燃料と改質用空気との混合割合を調整して、改質部 4 1 における改質原料の部分酸化量を調整することで、常に適温下で改質反応を促進することができる。すなわち、改質原料中の空気の割合を増加することで改質部 4 1 において部分酸化反応の割合を増やして発熱量を増やすことができる。改質原料の調整だ

けで一時的に熱量不足となった場合には、点火プラグ 1 5 で瞬時に改質原料に着火して、燃焼ガスによる燃焼を利用して熱補給することができる。

【 0 0 4 4 】

水素生成装置から燃料電池 6 0 への水素の供給を停止する場合には、改質用燃料と水の供給を停止し、次に空気の供給を停止する。この間、改質通路内の残存する可燃混合気は、熱交換器 2 0 内またはその表面部での触媒燃焼により燃焼完結するので、エミッションの排出を抑制することができる。

【 0 0 4 5 】

以上、本第 1 実施形態の水素生成装置によれば、改質用燃料を火炎燃焼させて始動用燃焼ガスを生成し、この燃焼熱により直接的に改質システムの各構成要素（熱交換器 2 0 や改質部 4 1）を加熱し、速やかに改質反応開始温度まで昇温させることができる。これにより、改質反応開始までの始動時間を短縮することが可能となる。従って、本第 1 実施形態の水素生成装置は、改質反応温度（7 0 0℃程度）が高いため始動時の早期昇温が特に重要となるガソリンや灯油等の石油系燃料を改質用燃料として用いる場合にも好適に用いることができる。

【 0 0 4 6 】

また、本第 1 実施形態の熱交換器 2 0 は、改質用空気の予熱機能と改質原料の気化機能を兼ね備えており、水素生成装置全体の小型化を図ることができる。

【 0 0 4 7 】

また、熱交換器 2 0 の隔壁の両伝熱面（改質原料通路 B とオフガス通路 C）に酸化用触媒を添着して触媒反応部（燃焼部）を形成することで、システム全体の小型化および低エミッション化を図ることができる。

【 0 0 4 8 】

また、熱交換器 2 0 内のオフガス燃焼処理に伴う発熱量を、改質原料の加熱・蒸発（気化）と、改質部 4 1 における吸熱反応（水蒸気改質反応）の補熱量として回収することで、高効率化を図ることができる。

【 0 0 4 9 】

また、熱交換器 2 0 の改質原料側では、始動時には全酸化反応（火炎燃焼）を利用することで急速に完全燃焼させることができ、改質作動時には改質原料の部

分酸化反応の反応率を改質用空気と改質用燃料の混合割合により調整することで、負荷の急速な変動時にも追従することが可能となる。

【0050】

また、改質原料（改質用燃料、水、空気）の供給混合部を、始動時の燃焼混合室と共用することで装置全体の小型化を図ることができる。

【0051】

（第2実施形態）

次に、本発明の第2実施形態について図5～図8に基づいて説明する。本第2実施形態の水素生成装置は、上記第1実施形態に比較して、熱交換器の構成が異なるものである。上記第1実施形態と同様の部分については同一の符号を付して説明を省略する。

【0052】

図5は、水素生成装置の改質原料供給部10と熱交換器70を示す概念図である。図6は第2実施形態の熱交換器70の単体斜視図である。図5、図6に示すように、本第2実施形態の水素生成装置で用いている熱交換器70は、改質空気用経路Aおよびオフガス通路Cと、改質原料通路Bおよびオフガス通路Cとが、それぞれ互いに対向するように形成されている対向流型熱交換器である。各経路は、図7に示すようにプレートフィンによる伝熱面が形成されており、フィン表面には酸化触媒71が添着されている。

【0053】

熱交換器70は、改質用空気通路Aと改質原料通路Bを形成する第1熱交換室70aと、オフガス通路Cを形成する第2熱交換室70bとが交互に連続して構成されている。

【0054】

図8（a）は熱交換器70を構成する第1熱交換室70aの断面図であり、図8（b）は第2熱交換室70bの断面図である。図8（a）に示すように、改質用空気は熱交換器70を図中右→左方向に通過し、改質原料は図中左→右方向に通過する。また、図8（b）に示すように、オフガスは図中上側から熱交換器70に入って図中右→左方向に通過した後、下方に進んで図中左→右方向に通過し

、その後、熱交換器 7 0 の下方から排出される。オフガスはオフガス通路 C 内で触媒燃焼し、オフガスの燃焼熱は隔壁を介して改質用空気や改質原料に伝えられる。

【 0 0 5 5 】

以上、本第 2 実施形態の水素生成装置のように対向流型熱交換器を用いることで、熱交換器の熱交換効率を高めるとともに、小型化をさらに図ることができる。

【 0 0 5 6 】

(第 3 実施形態)

次に、本発明の第 3 実施形態を図 9 ～図 1 1 に基づいて説明する。本第 3 実施形態の水素生成装置は、上記第 1 実施形態に比較して、熱交換器の構成が異なるものである。上記第 1 実施形態と同様の部分については同一の符号を付して説明を省略する。

【 0 0 5 7 】

図 9 は、水素生成装置の改質原料供給部 1 0 と熱交換器 8 0 を示す概念図である。図 1 0 は第 3 実施形態の熱交換器 8 0 の単体斜視図である。図 9、図 1 0 に示すように、本第 3 実施形態の熱交換器 8 0 は回転蓄熱式熱交換器からなる。

【 0 0 5 8 】

図 1 0 に示すように、熱交換器 8 0 は回転蓄熱体（熱交換部）8 1 とガスシール 8 2 とから構成されている。回転蓄熱体 8 1 は円柱形状であり、軸方向に多数の貫通流路（セル）8 1 a が形成されたハニカム構造となっている。ガスシール 8 2 は、回転蓄熱体 8 1 を両側から挟んで回転蓄熱体 8 1 内部をオフガス通路 C と改質原料通路 B とに分割するとともに、回転蓄熱体 8 1 と接触シールして流体漏れを極力低減する。ガスシール 8 2 は固定されており、回転蓄熱体 8 1 は駆動用モータ 8 3 にて回転軸 8 1 b を中心として回転駆動される。これにより、回転蓄熱体 8 1 に形成された各貫通流路 8 1 a は、ガスシール 8 2 により区画された改質原料通路 B とオフガス通路 C との間を回転移動する。

【 0 0 5 9 】

図 1 1 は、回転蓄熱体 8 1 を構成するセル形状の例を示している。図 1 1 (a

）は矩形形状セル、図 1 1 （b）は三角形形状セルであり、それぞれの表面に酸化触媒 8 4 が添着されている。

【 0 0 6 0 】

図 9 に示すように、回転蓄熱体 8 1 のオフガス通路 C にオフガスが供給され、回転蓄熱体 8 1 のハニカム部で触媒燃焼による蓄熱昇温を生じる。回転蓄熱体 8 1 が回転することにより、蓄熱昇温した貫通流路 8 1 a は改質原料通路 B 側に回転移動する。ここで、改質原料通路 B に改質原料が供給されることで、回転蓄熱体 8 1 の蓄熱昇温した貫通流路 8 1 a で、改質原料を直接的に加熱・蒸発・気化させることができ、改質部 4 1 における改質反応に適合させることができる。

【 0 0 6 1 】

なお、水素生成装置の始動時には、回転蓄熱体 8 1 の回転を停止しておいた方が蓄熱体の熱容量が低下するので、短時間で暖気を完了させることができる。

【 0 0 6 2 】

以上、本第 3 実施形態の水素生成装置によれば、目の細かい伝熱セルを有する回転蓄熱式熱交換器を用いることにより、単位面積当たりの伝熱量を大きくすることができ、熱交換効率をより高めることができる。また、回転蓄熱体 8 1 はセラミック化を容易に行うことができるため、低コストであるとともに触媒 8 4 の担持を容易に行うことができる。

【 0 0 6 3 】

（他の実施形態）

なお、上記第 1 実施形態では、改質原料を点火プラグ 1 5 にて火炎燃焼させる燃焼室 1 4 を熱交換器 2 0 の上流側に配置したが、これに限らず、図 1 2 に示すように熱交換器 2 0 と改質部 4 1 の間に配置してもよい。図 1 2 の水素生成装置では、燃焼室 1 4 に空気を供給するエアノズル 1 6 が設けられている。エアノズル 1 7 からの空気供給量は流量制御弁 1 7 により制御されるように構成されている。

【 0 0 6 4 】

また、上記第 1 実施形態では、改質用空気の全てを混合部 1 2 に供給したが、これに限らず、図 1 3 に示すように改質用空気の一部を、熱交換器 2 0 を通過さ

せた後に、熱交換器 2 0 と改質部 4 1 との間に供給するように構成してもよい。
このような構成によれば、改質部 4 1 に供給される酸素量が増加するので、発熱反応である酸化触媒反応により、改質部 4 1 の加熱を促進することができる。

【0 0 6 5】

また、上記各実施形態では、始動用燃焼ガスを改質部 4 1 から燃料電池 6 0 に一旦供給した後、オフガス導入経路 6 1 を介して熱交換器 2 0 に供給するように構成しているが、これに限らず、燃料電池 6 0 をバイパスさせる経路を設けて、燃焼ガスは燃料電池 6 0 をバイパスさせるように構成してもよい。

【0 0 6 6】

また、上記各実施形態では、改質用燃料としてガソリン、軽油等の液状石油系燃料を用いたが、これに限らず、改質用燃料としてメタノール、天然ガス等の各種炭化水素化合物を用いることができ、さらに例えばアンモニアのような炭素を含まない水素化合物を用いることもできる。

【0 0 6 7】

また、上記第 1 実施形態では直交流型熱交換器を用い、上記第 2 実施形態では対向流型熱交換器を用いたが、これらの直交流型と対向流型を併用した熱交換器を用いてもよい。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

第 1 実施形態の水素生成装置のブロック図である。

【図 2】

図 1 の水素生成装置の各構成要素の配置関係を示す概念図である。

【図 3】

図 1 の熱交換器の単体斜視図である。

【図 4】

図 3 の熱交換器の拡大断面図である。

【図 5】

第 2 実施形態の水素生成装置における改質原料供給部と熱交換器を示す概念図である。

【図 6】

図 5 の水素生成装置の熱交換器の単体斜視図である。

【図 7】

図 6 の熱交換器の拡大断面図である。

【図 8】

図 6 の熱交換器の第 1、第 2 熱交換室の断面図である。

【図 9】

第 3 実施形態の水素生成装置の概念図である。

【図 1 0】

図 9 の水素生成装置の熱交換器の分解斜視図である。

【図 1 1】

図 1 0 の熱交換器の拡大断面図である。

【図 1 2】

第 4 実施形態の水素生成装置の概念図である。

【図 1 3】

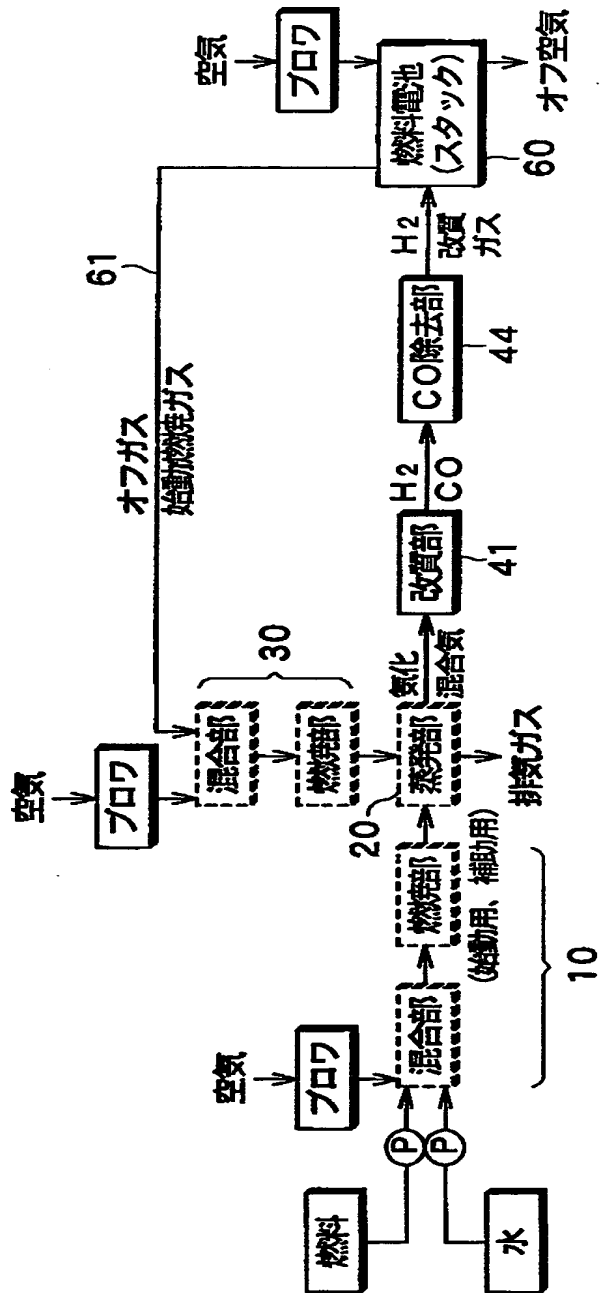
第 5 実施形態の水素生成装置の概念図である。

【符号の説明】

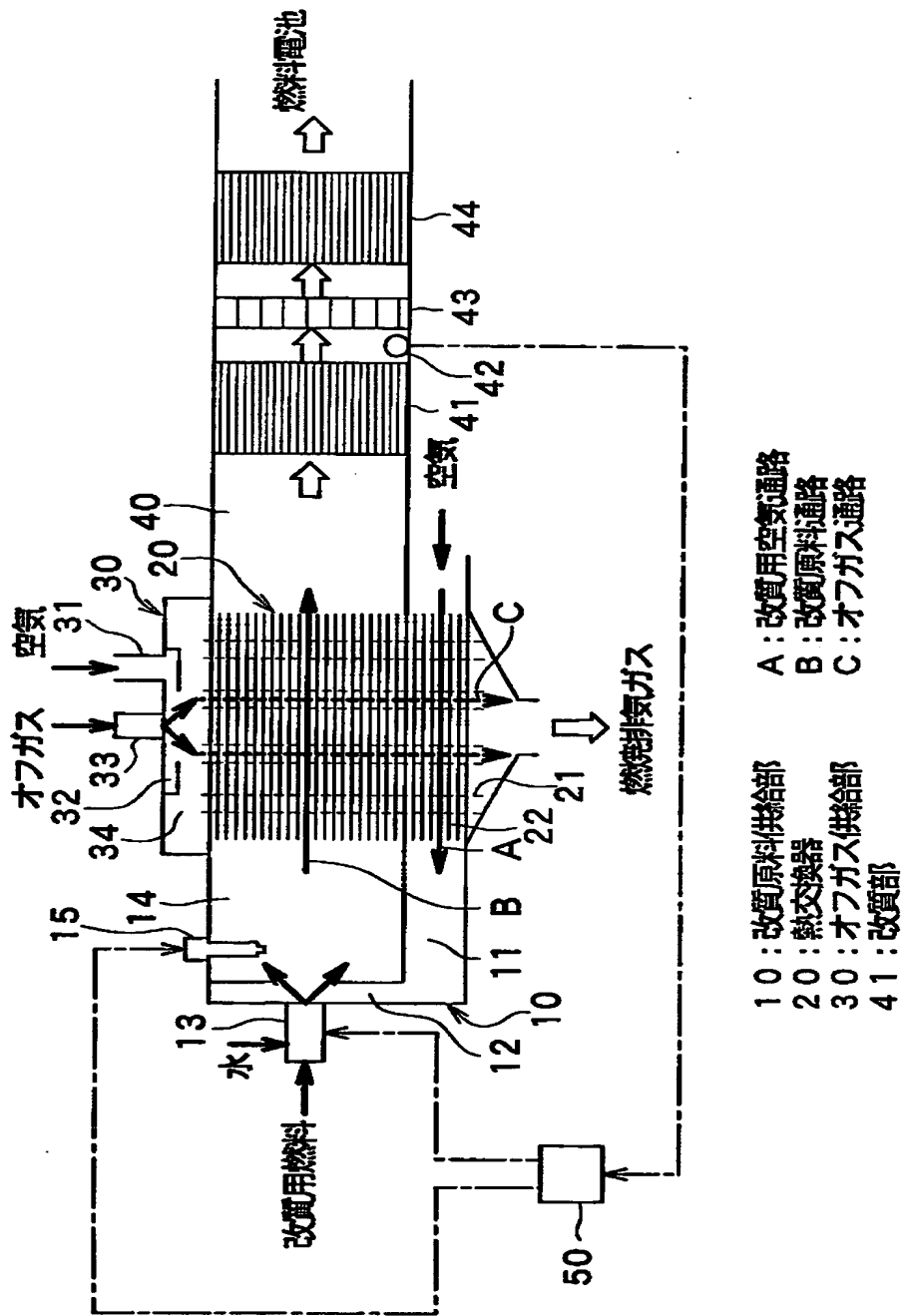
1 0…改質原料供給部、2 0、7 0、8 0…熱交換器（蒸発器）、3 0…オフガス供給部、4 1…改質部、4 4…CO除去部、5 0…制御部、A…改質用空気通路、B…改質原料通路、C…オフガス通路。

【書類名】 図面

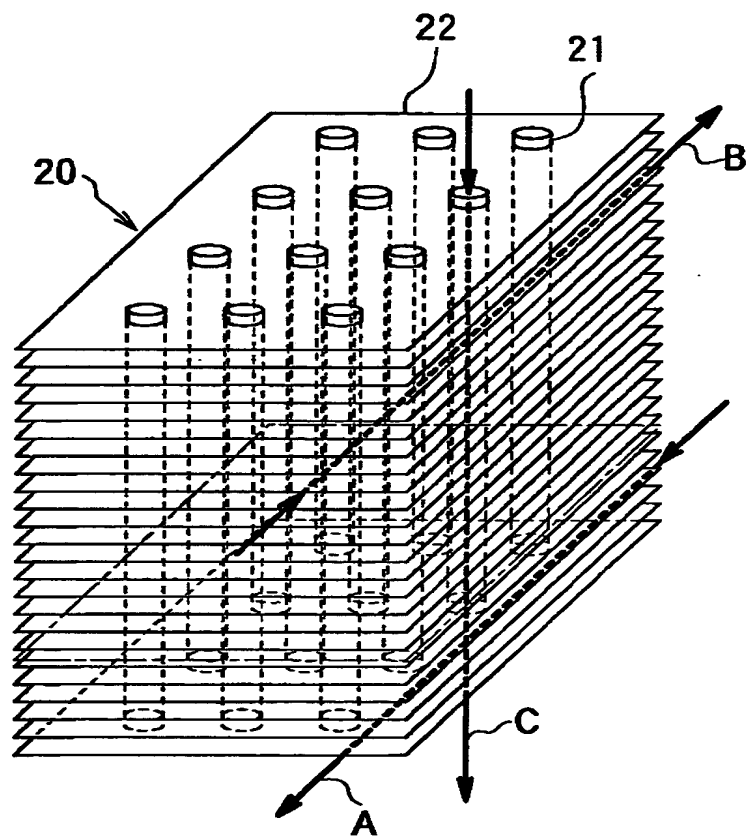
【図 1】



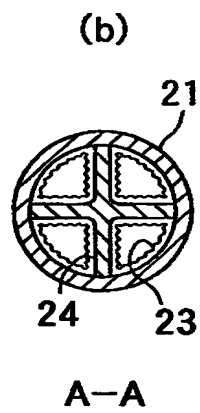
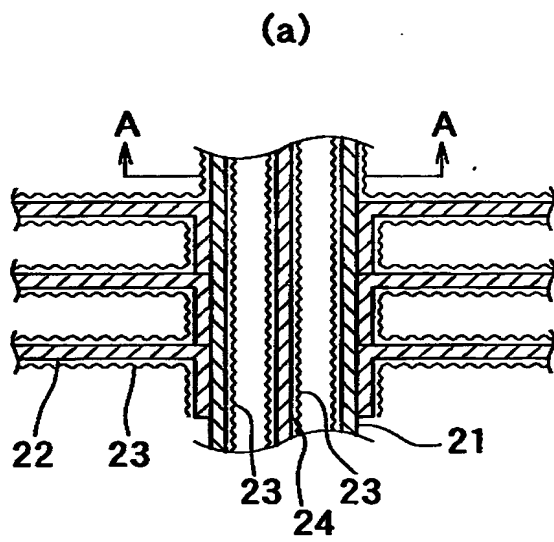
【図2】



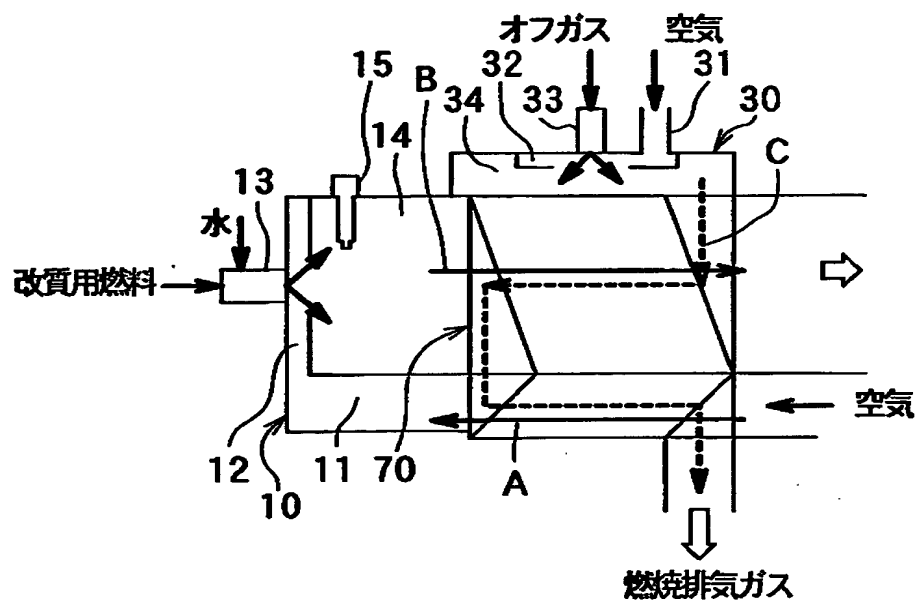
【図 3】



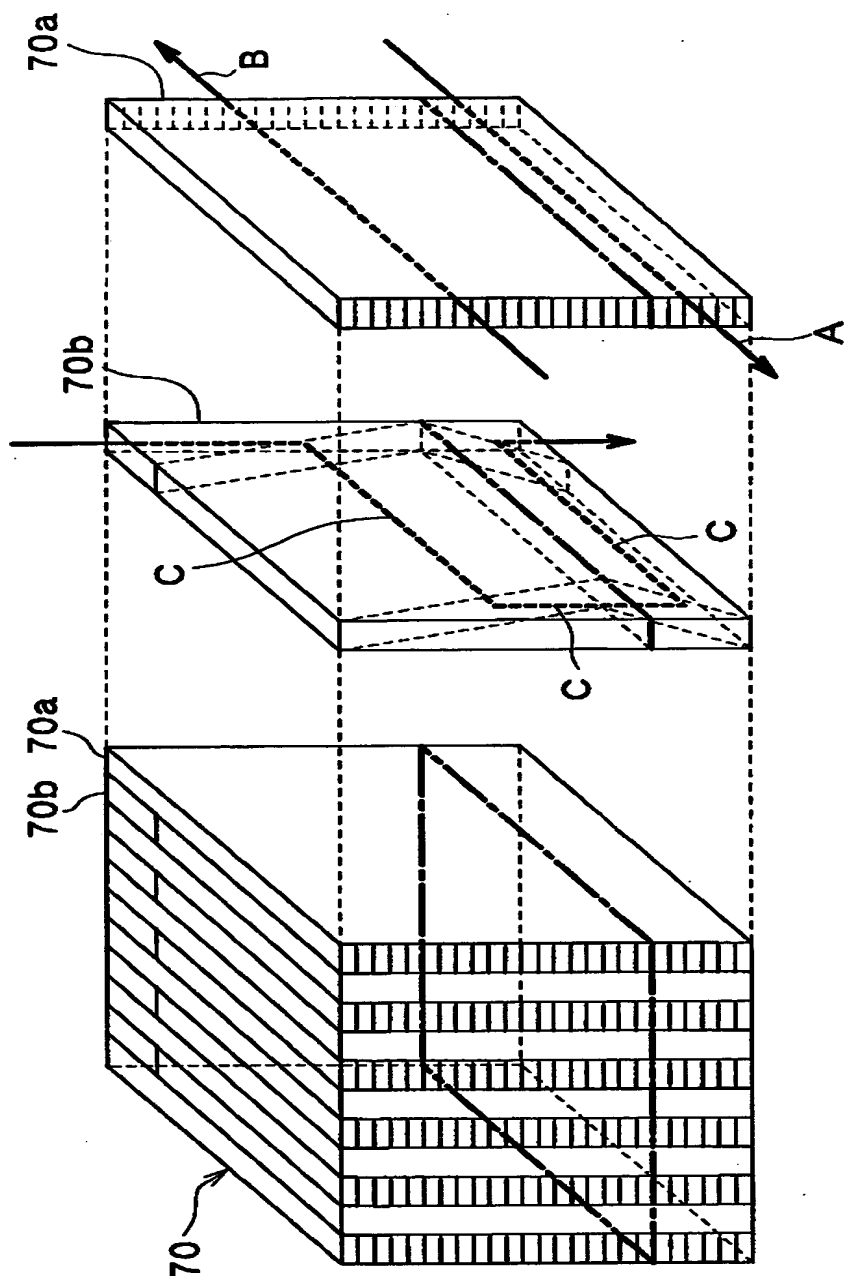
【図 4】



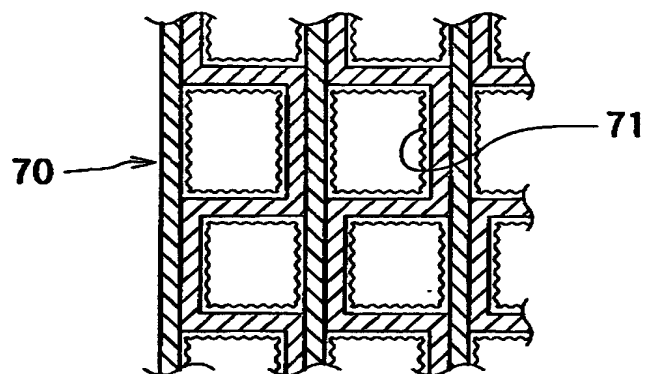
【図 5】



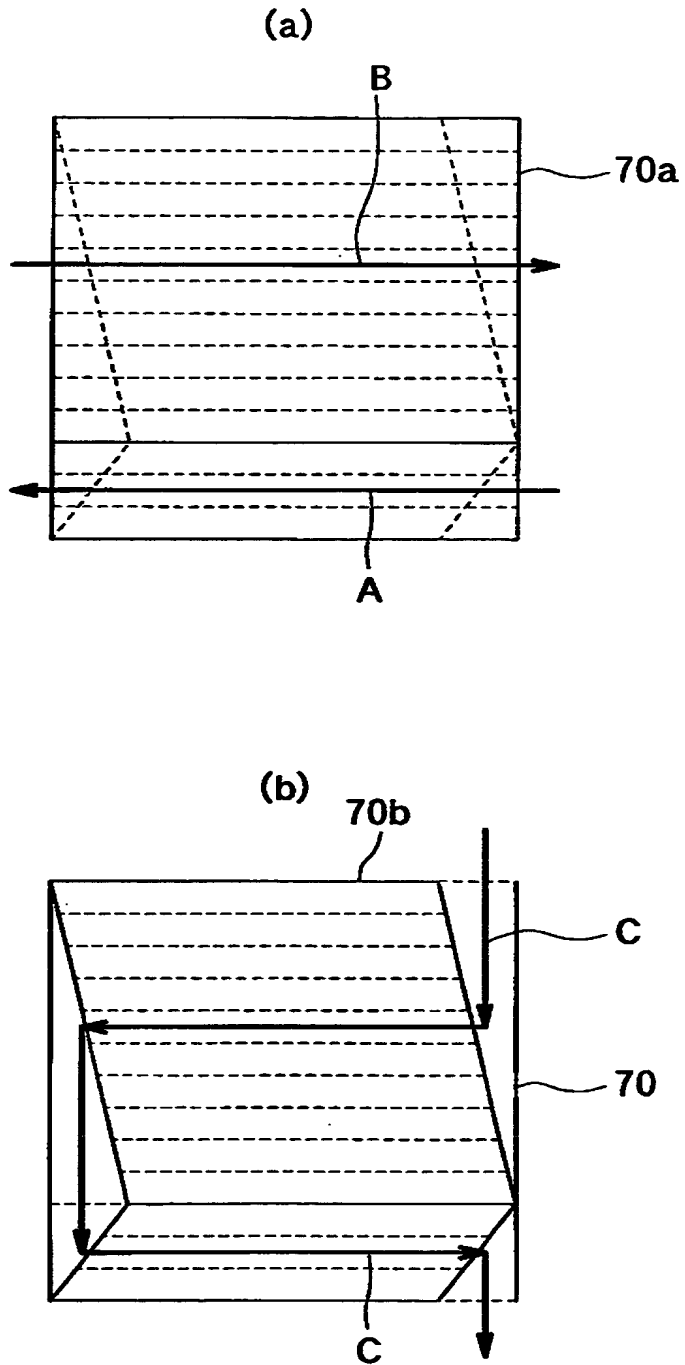
【図6】



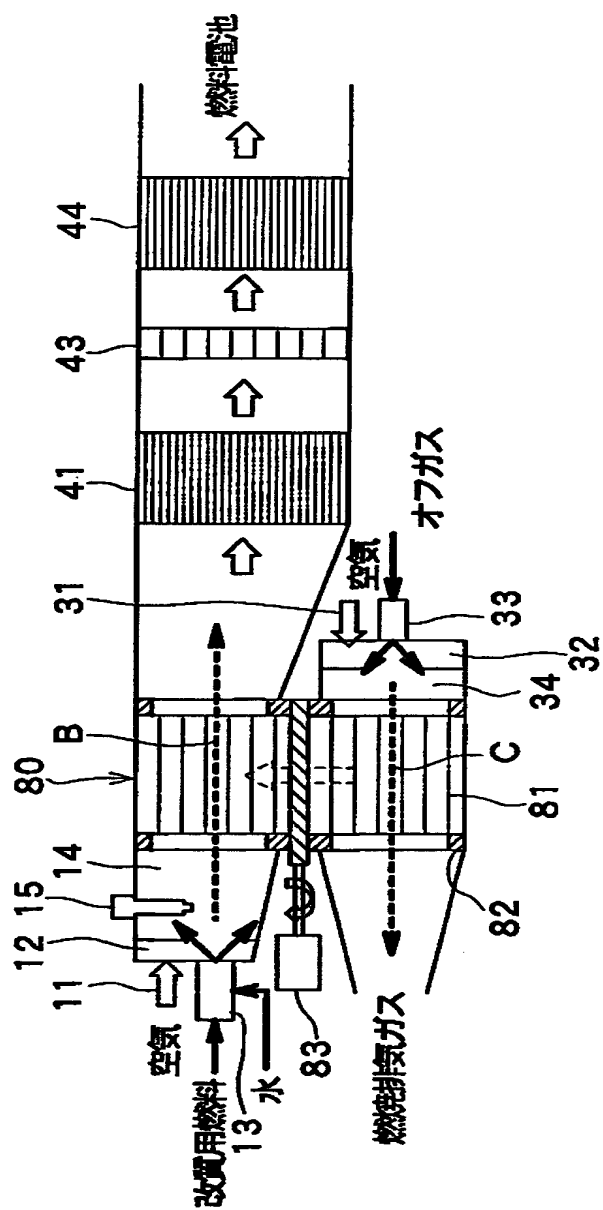
【图 7】



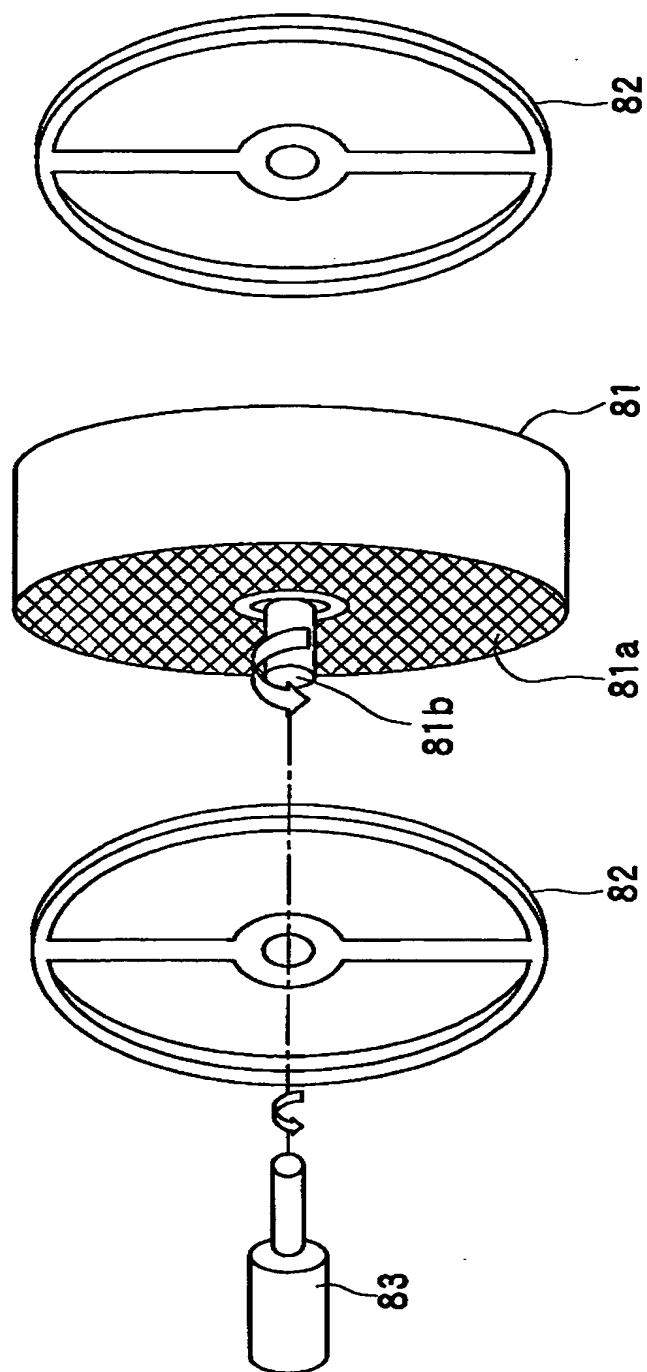
【図 8】



【図 9】

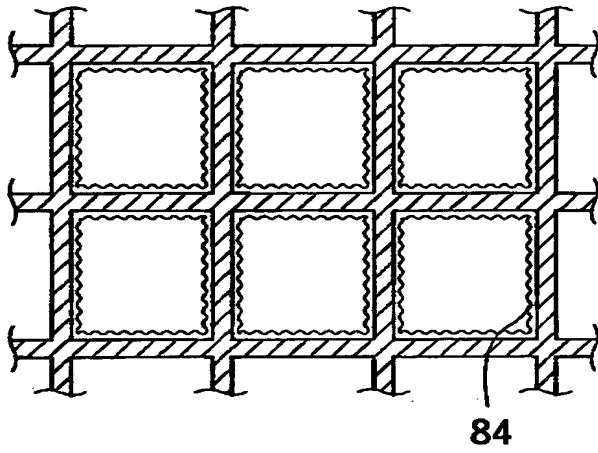


【図 1 0】

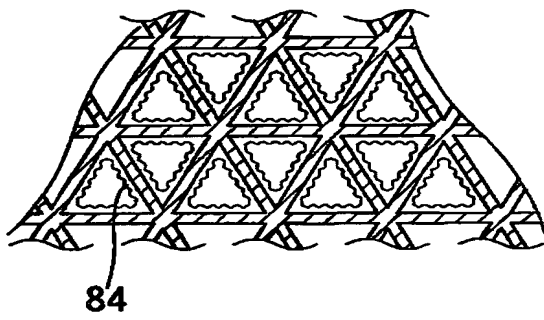


【図 1 1】

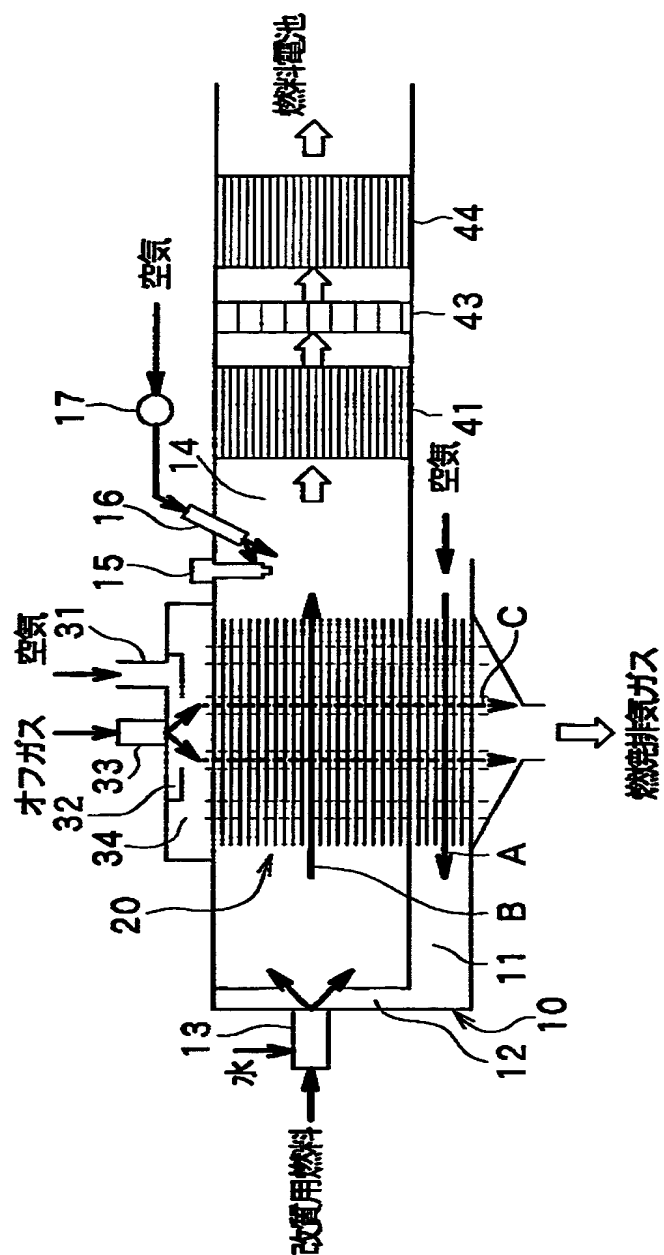
(a)



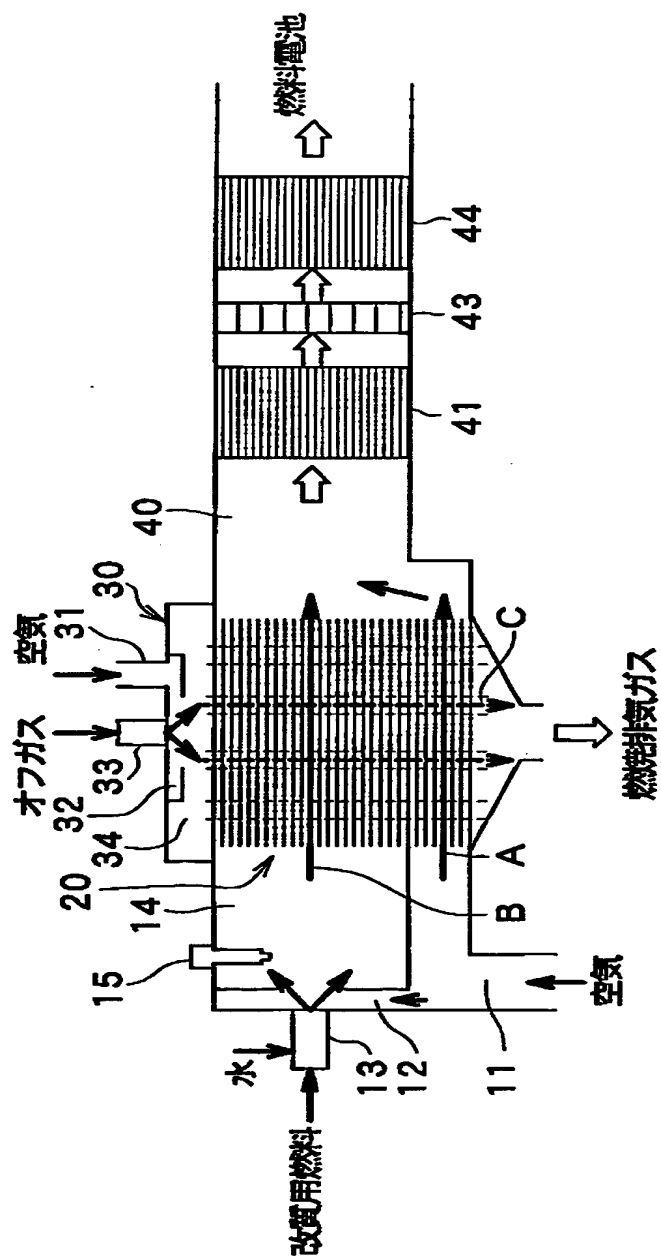
(b)



【図 12】



【図 13】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 改質反応により水素を生成して水素消費装置に水素を供給する水素生成装置において、改質反応の始動性を向上させる。

【解決手段】 改質原料を供給する改質原料供給部 1 0 と、改質原料供給部 1 0 の下流側に配置され、改質原料通路 B およびオフガス通路 C とが形成され、オフガス通路 C にてオフガスを燃焼させる熱交換部 2 0、7 0、8 1 と、熱交換部 2 0、7 0、8 1 の下流側に配置され、触媒反応により改質原料を水素に改質する改質部 4 1 と、改質部 4 1 の上流側に配置され、燃焼用炭化水素化合物を燃焼させる燃焼部 1 4、1 5 が設けられている。熱交換部 2 0、7 0、8 1 では、オフガスの燃焼により発生した熱あるいは燃焼ガスの熱が改質原料に伝えられる。

【選択図】 図 2

特 2000-261092

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000004260]

1. 変更年月日 1996年10月 8日
[変更理由] 名称変更
住 所 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地
氏 名 株式会社デンソー